

BEST AVAILABLE COPY

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平4-328295

(43)公開日 平成4年(1992)11月17日

| | | | | |
|--------------------------|------|---------|-----|--------|
| (51)Int.Cl. ⁵ | 識別記号 | 序内整理番号 | F I | 技術表示箇所 |
| H 05 B 33/14 | | 8815-3K | | |
| H 01 L 29/28 | | 8728-4M | | |
| // C 09 K 11/00 | F | 6917-4H | | |
| 11/06 | Z | 6917-4H | | |

審査請求 未請求 請求項の数3(全5頁)

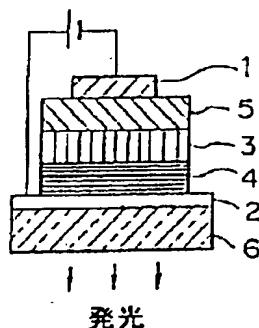
| | | | |
|----------|-----------------|---------|--|
| (21)出願番号 | 特願平3-97653 | (71)出願人 | 000005016 バイオニア株式会社 東京都目黒区目黒1丁目4番1号 |
| (22)出願日 | 平成3年(1991)4月26日 | (71)出願人 | 000111889 バイオニアビデオ株式会社 山梨県中巨摩郡田富町西花輪2680番地 |
| | | (72)発明者 | 田中 幸男 山梨県甲府市大里町465番地バイオニアビ デオ株式会社半導体工場内 |
| | | (72)発明者 | 真鍋 昌道 山梨県甲府市大里町465番地バイオニアビ デオ株式会社半導体工場内 |
| | | (74)代理人 | 弁理士 藤村 元彦 |
| | | | 最終頁に続く |

(54)【発明の名称】 有機エレクトロルミネッセンス素子

(57)【要約】

【目的】 長期間安定して高輝度発光する有機EL素子を提供する。

【構成】 有機化合物からなり互いに積層された電子輸送層、EL層及び正孔輸送層が陰極及び陽極間に配された有機EL素子であって、電子輸送層は、膜厚輝度減衰曲線特性の2番目に高い輝度の2次極大値を含む膜厚を有しあつその振幅がその収束する収束輝度値を越える輝度を生ずる範囲内の膜厚を有している。



BEST AVAILABLE COPY

(2)

特開平4-328295

1

【特許請求の範囲】

【請求項1】 有機化合物からなり互いに積層された電子輸送層、エレクトロルミネッセンス層及び正孔輸送層が陰極及び陽極間に配された有機エレクトロルミネッセンス素子であって、前記電子輸送層は、膜厚輝度減衰特性の2次極大値を生ずる膜厚を含みかつその振幅がその収束輝度値を越える輝度を生ずる範囲内の膜厚を有していることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項2】 前記電子輸送層は、前記膜厚輝度減衰特性の2次極大値を生ずる膜厚のみを有していることを特徴とする請求項1記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項3】 前記エレクトロルミネッセンス層はアルミキノリノール錯体からなり、前記正孔輸送層はトリフェニルジアミン誘導体からなり、さらに前記電子輸送層はオキサジアゾール誘導体からなり、前記収束輝度値を越える輝度を生ずる範囲が $2000\text{ \AA} \pm 300\text{ \AA}$ であることを特徴とする請求項1記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【技術分野】 本発明は、電流の注入によって発光する物質のエレクトロルミネッセンス（以下、ELという）を利用して、かかる物質を薄膜に形成したEL層を備えたEL素子に関し、特に発光物質が有機化合物である有機EL素子に関する。

【0002】

【背景技術】 この種の有機EL素子として、図1に示すように、金属陰極1と透明陽極2との間に、それぞれ有機化合物からなり互いに積層された発光体薄膜からなるEL層3及び正孔輸送層4が配された2層構造のものや、図2に示すように、金属陰極1と透明陽極2との間に互いに積層された有機化合物からなる電子輸送層5、EL層3及び正孔輸送層4が配された3層構造のものが知られている。ここで、正孔輸送層4は陽極から正孔を注入させ易くする機能と電子をブロックする機能とを有し、電子輸送層5は陰極から電子を注入させ易くする機能を有している。

【0003】 これら有機EL素子において、透明陽極2の外側にはガラス基板6が配されており、金属陰極1から注入された電子と透明陽極2からEL層3へ注入された正孔との再結合によって励起子が生じ、EL層における正孔輸送層との境界面近傍にて励起子が放射失活する過程で光を放ち、この光が透明陽極2及びガラス基板6を介して外部に放出される（特開昭59-194393号公報及び特開昭63-295695号公報参照）。

【0004】 しかしながら、上述した構成の従来の有機EL素子は、EL層内でエネルギー消費し低電圧で発光するけれども、EL層が 500 \AA 以下と薄い膜厚の場

2

合、一般に寿命が短い。例えば、図1に示す2層構造で膜厚 300 \AA のEL層を有する有機EL素子を初期輝度 400 cd/m^2 となるように連続発光させると、該素子は100時間以下で輝度が半減し劣化する。

【0005】 一方、EL層の膜厚を大きくすると定電圧駆動であっても膜厚の増大とともにその輝度は減少する。EL素子の発光原理から考えると輝度は印加電流に比例すると考えられるが、実際は異なる。

【0006】

10 【発明の目的】 本発明は、長期間安定して高輝度発光する有機EL素子を提供することを目的とする。

【0007】

【発明の構成】 本発明による有機EL素子は、有機化合物からなり互いに積層された電子輸送層、EL層及び正孔輸送層が陰極及び陽極間に配されたものであって、電子輸送層は、膜厚輝度減衰特性の2次極大値を生ずる膜厚を含みかつその振幅がその収束輝度値を越える輝度を生ずる範囲内の膜厚を有していることを特徴とする。

【0008】

20 【実施例】 以下に本発明による実施例を図を参照しつつ説明する。本実施例の有機EL素子は、図2に示すものと同様な、一対の金属陰極1と透明陽極2との間に電子輸送層5、EL層3及び正孔輸送層4を薄膜として積層、成膜した3層構造のものである。例えば陰極1には、アルミニウム、マグネシウム、インジウム、銀又は各々の合金等の仕事関数が小さな金属からなり厚さが約 100 \AA ～ 5000 \AA 程度のものが用い得る。また、例えば陽極2には、インジウムすず酸化物（以下、ITOという）等の仕事関数の大きな導電性材料からなり厚さが 1000 \AA ～ 3000 \AA 程度で、又は金で厚さが 800 \AA ～ 1500 \AA 程度のものが用い得る。

30 【0009】 本発明による有機EL素子の電子輸送層5としては、オキサジアゾール誘導体であるBu-PBD[2-(4'-tert-Butylphenyl)-5-(biphenyl)-1,3,4-oxadiazole]（以下、PBDという）が好ましく用いられる。本発明による有機EL素子のEL層3を形成する有機螢光化合物の具体的な例としては、アルミキノリノール錯体すなわちA1オキシンキレート（以下、A1q₃という）、テトラフェニルブタジエン誘導体等が用いられる。EL層3の膜厚は 200 \AA 以下で発光する限度以上の膜厚が好ましい。正孔輸送層4には、トリフェニルジアミン誘導体であるN,N'-ジフェニル-N,N'-ビス(3メチルフェニル)-1,1'-ビフェニル-4,4'-ジアミン（以下、TPDという）が好ましく用いられ、更にCTM(Carrier Transporting Materials)として知られる化合物を単独、もしくは混合物として用い得る。

40 【0010】 発明者は、3層構造の有機EL素子の電子輸送層及びEL層の合計膜厚、発光スペクトル及び輝度並びに視角の研究の結果、輝度と電子輸送層膜厚の間に

は輝度の膜厚依存性が、輝度の視角依存性があることを知見した。すなわち、図3に示すように有機EL素子のガラス基板6側表面を目視者が見る角度によって発光スペクトル及び輝度が変化する。目視者にとってEL層内の発光源Pの1点から発した光には、図中の直接基板6へ向かう経路A及び背面の金属電極1で反射し基板6へ向かう経路Bの2つの光が含まれる。この2つの経路の光は以下の式1に示す光路差L、さらに式2に示す位相差 ηy を保持しているので、互いに干渉する。(両式中、nはEL層3の屈折率を、yは発光源Pから金属電極1までの距離を、θはEL層内における表示表面の法線からそれる視角を、λは波長をそれぞれ示す。以下、同じ)。

【0011】

【数1】

$$L = 2ny \cos \theta$$

【0012】

【数2】

$$\frac{4\pi ny \cos \theta}{\lambda} = \eta y$$

【0013】よって、干渉効果としてその強度I(y, λ)は式3の如く表せる。

【0014】

【数3】

$$I(y, \lambda) = \frac{1}{2} (1 + \cos(\eta y))$$

【0015】EL層中の発光強度f(y)の分布は、図4に示すように正孔輸送層4の境界面においては強く金属電極1に向かうほど減少し、膜厚に関する指數関数分布として式4の如く表し、EL層全体としては式5の如く正規化できる(両式中、dは発光源から金属電極までの距離を、εは発光強度分布パラメータを、kは定数をそれぞれ示す。以下、同じ)。

【0016】

【数4】

$$f(y) = k \exp(y/\epsilon)$$

【0017】

【数5】

$$\int_{-\infty}^d f(y) dy = 1$$

【0018】発光源自体の発光スペクトルの強度分布F(λ)は発光体特有の波長入の関数として表せる。よって、目視者によって実際に観察されるEL素子の発光強度T(λ, θ, d)は式6の如く表せる。

【0019】

【数6】

$$T(\lambda) = F(\lambda) \times \int_{-\infty}^d f(y) \times I(y, \lambda) dy$$

【0020】ここで、EL素子の発光強度T(λ, θ, d)を確認するために、合計膜厚(y=d) 6000Å 50

とし発光強度分布パラメータεを200Åと一定にしたPBDからなる電子輸送層及びAlq₃からなるEL層を含む有機EL素子を作成し、視角θを0°から75°まで種々変化させてその発光強度の試験を行った。図5は、発光波長に対する発光強度分布を示す。かかる発光強度分布と上記式6の発光強度T(λ, θ, d)とが略一致することが確認された。図から明らかなように、目視者にとって視角0°から75°までEL素子表示面を見る方向によって色彩が順次異なるよう見える。

10 【0021】さらに、実用に沿うように、波長λに対して特定値で感応する目視者または光検出器の視感度特性E(λ)を考慮する。例えば視感度特性E(λ)を正規分布とすると、かかる感度特性内における電子輸送層及びEL素子の輝度特性L(d)は、式7の如くdの関数として表せる(Kは定数を示す。)

【0022】

【数7】

$$L(d) = K \int_{-\infty}^d T(\lambda) \times E(\lambda) d \lambda$$

20 【0023】図6は、PBDからなる電子輸送層及びAlq₃からなるEL層(θ=0, n=1, 7)についてこれらの合計膜厚の内、電子輸送層を0Åから8000Åにわたって変化させ計算した場合の膜厚に対する輝度/電流特性の膜厚輝度減衰(特性)曲線を示しており、この減衰曲線が有機EL素子における輝度の膜厚依存性を示している。

【0024】かかる有機EL素子の輝度の膜厚依存性を確認するための有機EL素子を作成し試験を行うと、図6と同様な減衰特性の結果が得られる。かかる有機EL素子は、図6に示すように、最小膜厚かつ最大輝度を示しこれを1次極大値として順次次値が増加(膜厚増加)するにつれて周期的に輝度の極大値が現れ、この極大値が減少する膜厚輝度減衰曲線の特性すなわち、輝度の電子輸送層の膜厚依存性を示している。なお、実測した膜厚輝度減衰曲線は、有機EL素子に膜厚500ÅのTPD正孔輸送層を用いているために特性曲線全体が計算による図6のものに比して変移する。

【0025】かかる有機EL素子の内、好適な実施例は、図6から明らかなようにAlq₃のEL層膜厚を200Åと固定し、電子輸送層の厚さを2次極大値Cに対応する2000Å±300Åとした有機EL素子である。この膜厚範囲の電子輸送層とすることによって、輝度を確保しつつ高印加電流からEL層を守ることができます。すなわち、この膜厚範囲は、図6に示す電子輸送層及びEL層材質に応じた膜厚に対する輝度/電流特性の膜厚輝度減衰曲線の2番目に高い輝度の2次極大値振幅がその収束する輝度値(収束輝度値)を越える範囲Dであり、特に電子輸送層を膜厚輝度減衰曲線における2番目に高い輝度を示す2次極大値近傍に対応する膜厚とすることにより高信頼性かつ高輝度の有機EL素子が得られ、好ましい。

BEST AVAILABLE COPY

(4)

5

【0026】さらに、視角の変化は膜厚が変化することと等しいので、電子輸送層を膜厚輝度減衰曲線における2次極大値近傍に対応する膜厚と設定することにより、視角が多少変化しても輝度の変化が小さい高輝度の有機EL素子が得られる。図7は、上記したPBD電子輸送層及びAlq₃EL層及びTPD正孔輸送層の3層構造の有機EL素子の各々について、視角度に対する輝度/電流の相対値を測定した結果を示す。試験した複数の有機EL素子は、膜厚500ÅのTPDの正孔輸送層、膜厚200ÅのAlq₃のEL層、及びが膜厚650Åから7225ÅのPBDの電子輸送層の3層構造を有するものである。図から明らかのように、1次、2次及び3次極大値に対応する電子輸送層膜厚650Å、2000Å及び4065Åを有する有機EL素子は、視角の増加に従って輝度が増加する視角による依存が少ない傾向にあることが分かる。よって、膜厚輝度減衰曲線における各々の振幅の極大値に対応するEL層及び電子輸送層膜厚であれば、輝度及び発光スペクトルの視角依存性が小さくなり視角による色彩の変化も小さい有機EL素子が得られる。電子輸送層を膜厚輝度減衰曲線における2番目に高い輝度を示す2次極大値近傍に対応する膜厚とする上記実施例も、輝度の視角依存性が小さい。

【0027】ここで、実施例として膜厚輝度減衰曲線における2次極大値近傍に対応する電子輸送層膜厚とする有機EL素子が好ましいのは、1次極大値の膜厚の電子輸送層は薄いためにEL層を保護するに十分な厚さが確保出来ず有機EL素子の寿命が短いものとなってしまい、3次極大値以上のものは輝度/電流値が低くなってしまう為である。すなわち、2次極大値の膜厚を有する上記実施例が、有機EL素子の寿命と輝度の均衡がとれた高信頼性かつ高輝度の有機EL素子であるからである。電子輸送層膜厚を変化させているのは、電子輸送層材料がEL層材料よりも比抵抗が小さく、即ち導電性が良いので、EL層膜厚を変化させ駆動電流を増加させなくともすむからである。

【0028】さらに、本発明は、上記実施例の電子輸送

特開平4-328295

6

層材料及びEL層材料に限らず、電子輸送層材料及びEL層材質に応じた図6に示す膜厚に対する輝度/電流特性の膜厚輝度減衰曲線から2次極大値振幅に対応する電子輸送層膜厚値を得ることが出来る。

【0029】

【発明の効果】以上説明したように、本発明による互いに積層された電子輸送層、EL層及び正孔輸送層からなる有機EL素子は、電子輸送層は、膜厚輝度減衰曲線の2番目に高い輝度の2次極大値の振幅がその収束する輝度値を越える範囲内の膜厚を有しているので、耐久性を向上させつつ低電圧にて効率良く高輝度で発光させることができる。本発明によれば、発光スペクトルの視角依存性が小さいために視角による色彩の変化も小さい高信頼性かつ高輝度有機EL素子が得られる。

【図面の簡単な説明】

【図1】2層構造の有機EL素子を示す構造図である。

【図2】3層構造の有機EL素子を示す構造図である。

【図3】2層構造の有機EL素子における光の干渉を説明する部分拡大断面図である。

【図4】2層構造の有機EL素子におけるEL層の膜厚発光強度分布を説明するグラフである。

【図5】2層構造の有機EL素子におけるEL層の波長発光強度分布を説明するグラフである。

【図6】2層構造の有機EL素子におけるEL層の単体層の膜厚輝度減衰曲線を説明するグラフである。である。

【図7】EL層及び正孔輸送層の2層構造の有機EL素子における実測した視角度輝度特性曲線を示すグラフである。

30 【符号の説明】

1 ……金属陰極

2 ……透明陽極

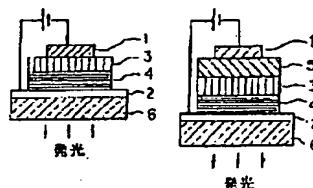
3 ……EL層

4 ……正孔輸送層

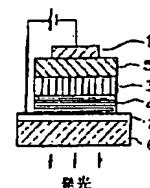
5 ……電子輸送層

6 ……ガラス基板

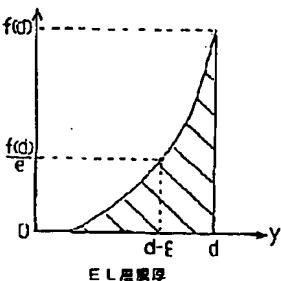
【図1】



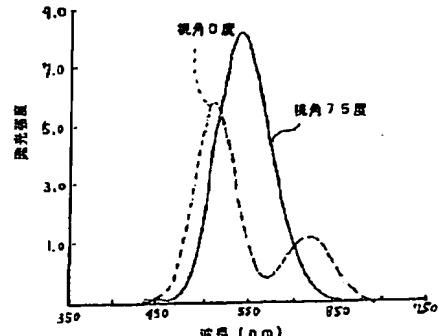
【図2】



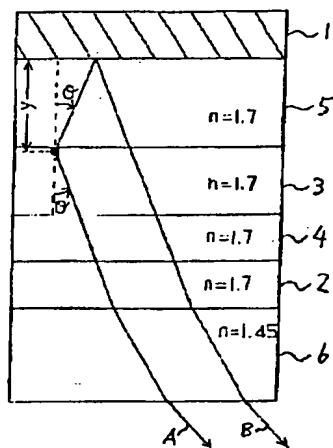
【図4】



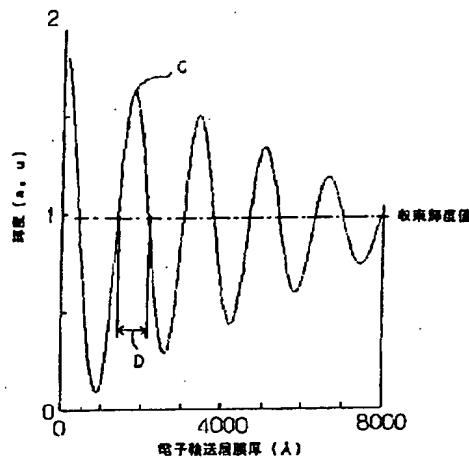
【図5】



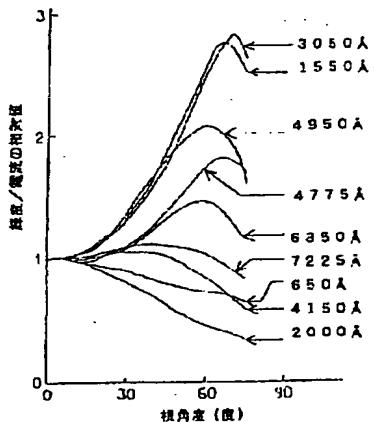
BEST AVAILABLE COPY
【図3】



【図6】



【図7】



フロントページの続き

(72)発明者 雨宮 公男
山梨県甲府市大里町465番地バイオニアビ
デオ株式会社半導体工場内

(72)発明者 米本 圭伸
山梨県甲府市大里町465番地バイオニアビ
デオ株式会社半導体工場内